

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Masaki IJIMA, et al.

GAU:

SERIAL NO: NEW APPLICATION

EXAMINER:

FILED: HEREWITH

FOR: SYNTHETIC GAS MANUFACTURING PLANT AND SYNTHETIC GAS MANUFACTURING METHOD

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e):
Application No. Date Filed

☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:


<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	2002-332719	November 15, 2002

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)
☐ are submitted herewith
☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.


C. Irvin McClelland

Registration No. 21,124

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年11月15日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-332719

[ST.10/C]:

[JP 2002-332719]

出 願 人

Applicant(s):

三菱重工業株式会社

2003年 7月 1日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎

出証番号 出証特2003-3052032

【書類名】 特許願

【整理番号】 A000201098

【提出日】 平成14年11月15日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C07C 1/00

【発明の名称】 合成ガスの製造方法

【請求項の数】 6

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目5番1号 三菱重工業株式会社内

 【氏名】 飯嶋 正樹

【発明者】

 【住所又は居所】 広島県広島市西区観音新町四丁目6番22号 三菱重工業株式会社広島研究所内

 【氏名】 小林 一登

【発明者】

 【住所又は居所】 広島県広島市西区観音新町四丁目6番22号 三菱重工業株式会社広島研究所内

 【氏名】 大空 弘幸

【発明者】

 【住所又は居所】 広島県広島市西区観音新町四丁目6番22号 三菱重工業株式会社広島研究所内

 【氏名】 清木 義夫

【特許出願人】

 【識別番号】 000006208

 【氏名又は名称】 三菱重工業株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100058479

 【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】 100084618

【弁理士】

【氏名又は名称】 村松 貞男

【選任した代理人】

【識別番号】 100068814

【弁理士】

【氏名又は名称】 坪井 淳

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100100952

【弁理士】

【氏名又は名称】 風間 鉄也

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0001618

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 合成ガスの製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 天然ガスと水蒸気を外部加熱方式の改質器に供給し、水素及び一酸化炭素を主成分とする合成ガスを製造する合成ガスの製造方法において、

前記改質器の改質管を加熱するための燃焼輻射部より排出される全量の燃焼排ガスより二酸化炭素を二酸化炭素回収装置により回収し、回収した該二酸化炭素を圧縮機で圧縮してその一部又は全部を前記改質器へ供給される前の前記天然ガスに混合し合成ガスの原料とすることを特徴とする合成ガスの製造方法。

【請求項 2】 前記二酸化炭素回収装置により二酸化炭素を回収される前記燃焼排ガスの量は、流路面積可変手段により可変であることを特徴とする請求項 1 記載の合成ガスの製造方法。

【請求項 3】 前記改質器で合成された合成ガスと水とで熱交換をしてスチームを発生させ、このスチームで圧縮機駆動用スチームタービンを駆動させることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の合成ガスの製造方法。

【請求項 4】 前記燃焼輻射部で発生する燃焼排ガスの熱を前記改質器で合成ガスの合成反応に供した後、さらに水と熱交換してスチームを発生させ、このスチームで圧縮機駆動用スチームタービンを駆動させることを特徴とする請求項 1 ないし 3 いずれか記載の合成ガスの製造方法。

【請求項 5】 合成ガスの原料として使用されない前記圧縮された二酸化炭素の残部は、地中に供給されて固定化されることを特徴とする請求項 1 ないし 4 いずれか記載の合成ガスの製造方法。

【請求項 6】 製造された合成ガスは、メタノール、ジメチルエーテル、またはフィッシャ・トロプシュ反応系でのガソリン、灯油および軽油の合成に使用されることを特徴とする請求項 1 ないし 5 いずれか記載の合成ガスの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、例えばメタノールの合成、ジメチルエーテルの合成、またはフィッ

シャ・トロプシュ反応系でのガソリン、灯油および軽油の合成に用いられる合成ガスの製造方法に関する。

【 0 0 0 2 】

さらに詳しくは、系内で発生する二酸化炭素を合成ガスの原料として用い、さらに残部が生じた場合も大気に放出しないで地球温暖化防止に寄与し、系内で発生した熱の有効活用もできる省エネルギーの合成ガスの製造方法に関する。

【 0 0 0 3 】

【従来の技術】

水素 (H_2) と一酸化炭素 (CO) を主成分とする合成ガスは、例えばメタノール、ジメチルエーテル (DME)、またはフィッシャ・トロプシュ反応系での GTL (Gas to Liquid) プロセスによるガソリン等の合成に用いられている。

【 0 0 0 4 】

ところで、本願出願人が出願の特許文献 1 には加湿器内に天然ガスおよび改質器の燃焼排ガスから回収した二酸化炭素を供給して蒸気が添加された天然ガス、二酸化炭素を含む原料ガスを調製し、この原料ガスを前記改質器に供給して改質反応を行うことによって合成ガスを製造する方法が開示されている。

【 0 0 0 5 】

このような合成ガスの製造方法は、前記改質器で発生した燃焼排ガスから二酸化炭素を一部回収し、合成ガスの原料ガスとして利用するため、合成ガスの増産化とともに、煙突から大気に排出される二酸化炭素の放出量を削減でき、地球の温暖化防止に寄与する。

【 0 0 0 6 】

【特許文献 1】

特開 2 0 0 1 - 9 7 9 0 5

【 0 0 0 7 】

【発明が解決しようとする課題】

近年、地球の温暖化現象対策の一つとして、化石燃料等を燃焼させた場合に発生する二酸化炭素の大気への放出量を極力低減することが、強く望まれている。

【 0 0 0 8 】

しかしながら、従来の合成ガスの製造方法では相当量の二酸化炭素が煙突から大気に放出される。

【 0 0 0 9 】

本発明は、上記事情に鑑み二酸化炭素の大気放出をほぼゼロとする合成ガスの製造方法を提供し、地球環境保全に大きく寄与することを目的とする。

【 0 0 1 0 】

さらに、本発明は系内で発生する熱の系内有効利用を図り、系外放出量を最小限とする省エネルギーの合成ガスの製造方法を提供することを目的とする。

【 0 0 1 1 】

【課題を解決するための手段】

本発明に係る合成ガスの製造方法は、天然ガスと水蒸気を外部加熱方式の改質器に供給し、水素及び一酸化炭素を主成分とする合成ガスを製造する合成ガスの製造方法において、

前記改質器の改質管を加熱するための燃焼輻射部より排出される全量の燃焼排ガスより二酸化炭素を二酸化炭素回収装置により回収し、回収した該二酸化炭素を圧縮機で圧縮してその一部又は全部を前記改質器へ供給される前の前記天然ガスに混合し合成ガスの原料とすることを特徴とするものである。

【 0 0 1 2 】

本発明に係る合成ガスの製造方法において、前記二酸化炭素回収装置により二酸化炭素を回収される前記燃焼排ガスの量は流路面積可変手段により可変であることが好ましい。

【 0 0 1 3 】

本発明に係る合成ガスの製造方法において、前記改質器で合成された合成ガスと水とで熱交換をしてスチームを発生させ、このスチームで圧縮機駆動用スチームタービンを駆動させることを許容する。

【 0 0 1 4 】

本発明に係る合成ガスの製造方法において、前記燃焼輻射部で発生する燃焼排ガスの熱を前記改質器で合成ガスの合成反応に供した後、さらに水と熱交換してスチームを発生させ、このスチームで圧縮機駆動用スチームタービンを駆動させ

ることを許容する。

【0015】

本発明に係る合成ガスの製造方法において、合成ガスの原料として使用されない前記圧縮された二酸化炭素の残部は、地中に供給されて固定化されることを許容する。

【0016】

本発明に係る合成ガスの製造方法において、製造された合成ガスはメタノール、ジメチルエーテル、またはフィッシャ・トロプシュ反応系でのガソリン、灯油および軽油の合成に使用されることを許容する。

【0017】

【発明の実施の形態】

以下、本発明に係る合成ガスの製造方法を、図面を参照して詳細に説明する。

【0018】

図1は、この実施形態に係る合成ガスの製造プラントを示す概略図、図2は図1の合成ガス製造プラントに組み込まれた二酸化炭素回収装置を示す概略図である。

【0019】

改質器10は、水蒸気改質用反応管11と、この反応管11の周囲に配置された燃焼輻射部12と、この燃焼輻射部12に対流部（廃熱回収部）13を備え、煙突14へ連通されている。前記反応管11内には、合成ガス合成用の触媒（例えばニッケル系触媒）が充填されている。

【0020】

燃料導入用流路20₁は、前記改質器10の燃焼輻射部12に接続されている。原料ガス導入用流路20₂は、前記改質器10の対流部13を経由して前記反応管11の上端に接続されている。この流路20₂には、脱硫器（図示せず）を介装してもよい。スチーム（水蒸気）導入流路20₃は、原料ガス導入用流路20₂の前記対流部13交差する前の上流側に接続されている。また、被加熱流体、例えばボイラ水が流通される流路20₄は、前記改質器10の対流部13に交差してその対流部13の燃焼排ガスと前記ボイラ水とが熱交換され、燃焼排ガス

を冷却するとともにボイラ水自身が加熱されてスチームが生成され、後述するスチームタービンに供給される。ここで、ボイラ水の圧力や熱交換伝導面積等を変えることにより、スチームタービン側のニーズに対応して中圧スチーム又は高圧スチームにして供給することができる。なお、このスチームの一部を合成ガスの合成に使用するため、前記スチーム導入流路 2 0₃を通して原料ガス導入用流路 2 0₂に供給しもよい。

【 0 0 2 1 】

合成ガス流通用流路 2 0₅は、前記改質器 1 0 の反応管 1 1 下端に接続されている。熱交換器 3 1 は、合成ガス流通用流路 2 0₅に介装されている。前記熱交換器 3 1 は、流路 2 0₆が交差され、この流路 2 0₆を流通する被加熱流体、例えばボイラ水を加熱してスチームを生成し、後述するスチームタービンに供給される。ここで、ボイラ水圧力や熱交換伝導面積等を変えることにより、スチームタービン側のニーズに対応して中圧スチーム又は高圧スチームにして供給することができる。

【 0 0 2 2 】

二酸化炭素回収装置 4 0 は、燃焼排ガス導入用流路 2 0₇を通して前記改質器 1 0 の対流部 1 3 に接続されている。この二酸化炭素回収装置 4 0 は、図 2 に示すように互いに隣接して配列された冷却塔 4 1、二酸化炭素吸収塔 4 2 および吸収液再生塔 4 3 を備えている。前記冷却塔 4 1 には、気液接触部材 4 4 が内蔵されている。前記二酸化炭素吸収塔 4 2 には、二酸化炭素を含んだ燃焼排ガスと、該燃焼排ガスから二酸化炭素を吸収除去する吸収液とを効率良く接触させるための気液接触部材 4 5 a が再生された吸収液のオーバーフロー部 4 6 の上部に、また、前記オーバーフロー部 4 6 の下部に前記同様の気液接触部材 4 5 b が具備されている。前記吸収液再生塔 4 3 には、上部側と下部側の 2 つの気液接触部材 4 7 a , 4 7 b が内蔵されている。

【 0 0 2 3 】

前記冷却塔 4 1 は、前記対流部 1 3 に前記燃焼排ガス導入用流路 2 0₇を通して接続されている。そして、対流部 1 3 内に設けられた流路面積可変手段（例えば、ダンパ 1 5）により、前記対流部 1 3 を前記燃焼排ガス導入用流路 2 0₇の

分岐の後流側で全閉することによって、前記燃焼排ガスの全量を二酸化炭素回収装置 4 0 へ導入することができるようになっている。また、ダンパ 1 5 の開度を調整することにより、二酸化炭素回収装置 4 0 のメンテナンスや故障時、その他の事情に応じて燃焼排ガスの全量又は一部を二酸化炭素回収装置 4 0 へ導入せずに煙突 1 4 より系外へ排出することもできるようになっている。

【 0 0 2 4 】

冷却水は、流路 2 0₈を通して前記冷却塔 4 1 の上部より噴射され、前記燃焼排ガス導入用流路 2 0₇を通して導入された燃焼排ガスと前記気液接触部材 4 4 で効率良く接触し、該燃焼排ガスを冷却している。前記冷却塔 4 1 の頂部は、流路 2 0₉を通して前記二酸化炭素吸収塔 4 2 の下部付近と接続され、かつこの流路 2 0₉にはブロワ 4 8 が介装されている。

【 0 0 2 5 】

前記吸収塔 4 2 の底部は、流路 2 0₁₀を通して前記吸収液再生塔 4 3 の 2 つの上部側と下部側の 2 つの気液接触部材 4 7 a , 4 7 b の間に位置するところに接続されている。ポンプ 4 9 および熱交換器 5 0 は、前記流路 2 0₁₀に前記吸収塔 4 2 側から順次介装されている。

【 0 0 2 6 】

前記吸収液再生塔 4 3 の底部は、前記熱交換器 5 0 を経由する流路 2 0₁₁を通して前記吸収塔 4 2 のオーバーフロー部 4 6 が位置する上部に接続されている。ポンプ 5 1 は、前記吸収液再生塔 4 3 の底部と前記熱交換器 5 0 の間に位置する前記流路 2 0₁₁に介装されている。流路 2 0₁₂は、一端が前記吸収塔 4 2 の前記オーバーフロー部 4 6 の個所に接続され、他端がポンプ 5 2 を経由して前記吸収塔 4 2 の上部側の気液接触部材 4 5 a 上の箇所に接続されている。熱交換器 5 6 は、前記流路 2 0₁₂に介装されている。排气流路 2 0₁₃は、一端が前記吸収塔 4 2 の頂部に接続され、他端が前記改質器 1 0 の対流部 1 3 に接続されている。

【 0 0 2 7 】

流路 2 0₁₄は、一端が前記吸収液再生塔 4 3 の下部付近に接続され、他端が同じく前記吸収液再生塔 4 3 の前記気液接触部材 4 7 b の直下に位置する箇所に接続されている。ポンプ 5 3 および前記熱交換器 5 4 は、前記流路 2 0₁₄に前記吸

収液再生塔 4 3 の下部付近側から順次介装されている。後述するスチームタービンからの低圧スチームが流通する流路 2 0₁₅は、前記熱交換器 5 4 に交差され、その低圧スチームが前記流路 2 0₁₄を流通する再生液と熱交換され、それ自身が凝縮される。流路 2 0₁₆は、一端が前記再生塔 4 3 の頂部に接続され、他端が冷却用熱交換器 5 5 を経由して後述する圧縮機に接続されている。前記冷却用熱交換器 5 5 より下流側の前記流路 2 0₁₆には、前記再生塔 4 3 の前記上部側気液接触部材 4 7 a の上部に接続される流路 2 0₁₇が分岐されている。

【 0 0 2 8 】

スチームタービン 6 1 により駆動される圧縮機 6 2 は、前記二酸化炭素回収装置 4 0 に前記流路 2 0₁₆を通して接続されている。この圧縮機 6 2 は、流路 2 0₁₈を経由して前記改質器 1 0 の上流側である前記原料ガス導入用流路 2 0₂に接続されている。圧縮二酸化炭素を系外に排出するための流路 2 0₁₉は、前記流路 2 0₁₈から分岐されている。

【 0 0 2 9 】

前記スチームが流通される流路 2 0₄、2 0₆は、前記スチームタービン 6 1 に接続され、このスチームタービン 6 1 には前述した二酸化炭素回収装置 4 0 の熱交換器 5 4 に交差される前記低圧スチーム流通流路 2 0₁₅が接続されている。

【 0 0 3 0 】

次に、前述した図 1 および図 2 に示す合成プラントを参照して合成ガスの製造方法を説明する。

【 0 0 3 1 】

まず、燃焼用燃料は燃料導入用流路 2 0₁を通して改質器 1 0 の燃焼輻射部 1 2 に供給され、ここで空気とともに燃焼されて反応管 1 1 を所定の温度に加熱する。この燃焼輻射部 1 2 で発生し反応管 1 1 を所定温度に加熱した燃焼排ガスは、対流部 1 3 へと流れ、この対流部 1 3 と交差する原料ガス導入用流路 2 0₂内を流通する原料ガスを予熱し、流路 2 0₄内を流通するボイラ水と熱交換されて冷却されるとともに、ボイラ水は中圧、又は高圧のスチームになる。

【 0 0 3 2 】

ボイラ水等により熱の一部を回収された燃焼排ガスは、通常は、ダンパ 1 5 に

より対流部 1 3 側と煙突 1 4 側とを遮断しておくことにより、全量が燃焼排ガス導入用通路 2 0₇ へと流れ二酸化炭素回収装置 4 0 の冷却塔 4 1 へ導入される。この冷却塔 4 1 では、導入された前記燃焼排ガスが、流路 2 0₈ を通して供給され噴霧された冷却水と気液接触部材 4 4 により効率よく気液接触され冷却される。冷却された燃焼排ガスは、前記冷却塔 4 1 の頂部から出てブロワ 4 8 の駆動により流路 2 0₉ を通して二酸化炭素吸収塔 4 2 の下部付近に供給され、その内部の下部側気液接触部材 4 5 b を上昇する間、吸収液再生塔 4 3 から熱交換器 5 0 を経由する流路 2 0₁₁ を通して前記吸収塔 4 2 の気液接触部の上部に供給された再生吸収液と接触してその燃焼排ガス中の二酸化炭素がアミン液に吸収される。燃焼排ガスは、さらに前記オーバーフロー部 4 6 を経由して上部側気液接触部材 4 5 a を上昇する間、ポンプ 5 2 の駆動により流路 2 0₁₂ と熱交換器 5 6 を通して前記吸収塔 4 2 の頂部付近に供給された水により二酸化炭素吸収熱により上昇した燃焼排ガスが冷却される。

【 0 0 3 3 】

二酸化炭素が除去された燃焼排ガスは、排气流路 2 0₁₃ を通して煙突 1 4 側へ送出され外に排出される。前記二酸化炭素吸収アミン液は、前記吸収塔 4 2 の底部に貯留され、ここからポンプ 4 9 の駆動により流路 2 0₁₀ を通して前記吸収液再生塔 4 3 の 2 箇所の気液接触部材 4 7 a , 4 7 b の間に供給される。このとき、前記二酸化炭素を吸収したアミン液は流路 2 0₁₀ に介装された熱交換器 5 0 を流通する間、前記再生塔 4 3 の底部に接続した流路 2 0₁₁ を流通する比較的温度の高い再生アミン液と熱交換されて加熱されるとともに、その再生アミン液が冷却される。加熱された二酸化炭素吸収アミン液は、前記再生塔 4 3 の下部側気液接触部材 4 7 b を流下する間に二酸化炭素と再生アミン液に分離される。このとき、前記再生塔 4 3 底部に貯留された再生アミン液はポンプ 5 3 の駆動により流路 2 0₁₄ を通して循環され、後述するスチームタービンから排出された低圧スチームが流通する流路 2 0₁₅ が交差される熱交換器 5 4 で熱交換されて加熱され、これにより前記再生塔 4 3 自体を加熱して二酸化炭素と再生アミン液との分離の熱源を付与する。

【 0 0 3 4 】

前記再生アミン液は、前記再生塔 4 3 底部に貯留され、ポンプ 5 1 の駆動により前記流路 2 0₁₁を通して前記吸収塔 4 2 に返送される。前記二酸化炭素は、上部側気液接触部材 4 7 a を上昇し、再生塔 4 3 頂部から流路 2 0₁₆を通して排出される間、冷却用熱交換器 5 5 で冷却され、二酸化炭素と共に持ち運ばれる水蒸気アミン水蒸気が凝縮され、その凝縮水は分岐された流路 2 0₁₇を通して前記再生塔 4 3 に戻される。

【 0 0 3 5 】

前記二酸化炭素回収装置 4 0 で前記燃焼排ガス中の二酸化炭素を回収した後、この二酸化炭素は前記流路 2 0₁₆を通して圧縮機 6 2 に供給される。このとき、前記改質器 1 0 の対流部 1 3 と交差して熱交換することにより生成されたスチームおよび後述する熱交換器 3 1 で熱交換することにより生成されたスチームを流路 2 0₄、2 0₆を通してスチームタービン 6 1 に供給して駆動し、この駆動力により前記圧縮機 6 2 を作動することによって、この圧縮機 6 2 に供給された二酸化炭素が圧縮される。なお、前記燃焼排ガスと熱交換してスチームを生成させる際に、ボイラ水流量や熱交換伝導面積等を変えることにより、スチームタービン側のニーズに対応して中圧スチームや高圧スチームにして供給することができる。

【 0 0 3 6 】

前記圧縮二酸化炭素の一部は、流路 2 0₁₈を通して後述する天然ガスが流通する流路 2 0₂に供給し、合成ガスの原料として使用することができる。圧縮二酸化炭素の残部は、流路 2 0₁₈、2 0₁₉を通して系外（例えば尿素プラント、地中）に排出してもよい。

【 0 0 3 7 】

また、前記スチームタービン 6 1 から排出された低圧スチームは流路 2 0₁₅を通して前記二酸化炭素回収装置 4 0 に供給され、その熱交換器 5 4 で流路 2 0₁₄を通して循環される再生アミン液と熱交換されてその再生アミン液を加熱し、自身が冷却されて凝縮水になる。この凝縮水は、前述したボイラ水として前記流路 2 0₁₅を通して流路 2 0₄、2 0₆に返送される。

【 0 0 3 8 】

メタンを主成分とする天然ガスは、原料ガス導入用流路 2 0₂に供給される。この時、前記圧縮機 4 0 で昇圧された二酸化炭素は流路 2 0₁₈を経由して原料ガス導入用流路 2 0₂を流通する前記天然ガスに所定量添加される。また、水蒸気（スチーム）は水蒸気導入用流路 2 0₃を通して前記天然ガスに所定量添加される。なお、この水蒸気は熱交換器 3 4 でボイラ水を合成ガスと熱交換することにより生成された水蒸気、または改質器 1 0 の対流部 1 3 でボイラ水を燃焼排ガスと熱交換することにより生成され水蒸気が利用されてもよい。

【 0 0 3 9 】

二酸化炭素および水蒸気が添加された天然ガスは、前記原料ガス導入用流路 2 0₂内を流通し、前記改質器 1 0 の対流部 1 3 を通過する間に加熱（予備加熱）され、その後前記反応管 1 1 に供給される。前記改質器 1 0 の反応管 1 1 に供給されたメタン（C H₄）を主成分とする天然ガス、水蒸気および二酸化炭素は、その反応管 1 1 内の触媒の存在下でメタンが主に水蒸気改質され、水素、一酸化炭素および二酸化炭素を含む合成ガスが製造される。この改質反応は、吸熱反応であるため、前述したように改質器 1 0 の燃焼輻射部 1 2 で燃料ガスと空気を燃焼させて前記反応管 1 1 内を例えば 8 5 0 ～ 9 0 0 ℃に加熱する。得られた合成ガスは、合成ガス流通用流路 2 0₅を経由して熱交換器 3 1 に供給され、ここで流路 2 0₆を流通するボイラ水を加熱し、水蒸気を発生させるとともに、それ自体が冷却される。この水蒸気は、前記スチームタービン 6 1 に供給され、その駆動に利用される。

【 0 0 4 0 】

以上、本発明の実施形態によれば改質器 1 0 に天然ガスおよび水蒸気を含む原料ガスを供給する改質工程により水素および一酸化炭素を含む合成ガスを製造するにあたり、前記改質器 1 0 で発生した全量の燃焼排ガス中の二酸化炭素を二酸化炭素回収装置 4 0 により回収し、この二酸化炭素を圧縮機 6 2 に供給するとともに、この圧縮機 6 2 を前記改質工程で発生する熱源を利用して駆動することにより二酸化炭素を圧縮する。具体的には、前記改質器 1 0 の対流部 1 3 と交差して熱交換することにより生成されたスチームおよび熱交換器 3 1 で熱交換することにより生成されたスチームを流路 2 0₄、2 0₆を通してスチームタービン 6 1

に供給して駆動し、このスチームタービン 6 1 の駆動力により前記圧縮機 6 2 を作動することによって、改質工程で発生する余剰のスチームを利用して二酸化炭素を圧縮することができる。

【 0 0 4 1 】

このような圧縮二酸化炭素の一部を天然ガスおよび水蒸気を含む前記原料ガスに供給し、この圧縮二酸化炭素を含む原料ガスを前記改質器 1 0 の反応管 1 1 に供給して改質反応を行うことによって、合成ガスの増産化を図ることができる。また、二酸化炭素回収装置 4 0 の故障時やその他の事情に応じて、ダンパ 1 5 の開度を調節することにより、燃焼排ガスの全量又は一部を二酸化炭素回収装置 4 0 へ導入せずに煙突 1 4 より系外へ排出することもできるようになる。

【 0 0 4 2 】

一方、前記圧縮二酸化炭素に残部がある場合は系外の設備を使用するなどして有効に利用することができる。さらに油田のような地中に排出して固定化することもできる。

【 0 0 4 3 】

したがって、合成ガスの増産化を図ることができるとともに、前記改質工程での余剰の熱源を有効に利用して、例えばその余剰熱でスチームを生成してスチームタービンに供給し、また、煙突からの二酸化炭素の放出をほぼゼロにでき、二酸化炭素排出税の削減による経済性の向上、地球の温暖化防止に寄与できる。

【 0 0 4 4 】

また、得られた合成ガスはフィッシャ・トロプシュ反応系でのガソリン等の合成、メタノールの合成またはジメチルエーテルの合成に適用することができる。ただし、フィッシャ・トロプシュ反応系でのガソリン等の合成に適用する場合はモル比で H_2 / CO が 1 ~ 2. 0 の組成を有する合成ガスを用いることが好ましい。

【 0 0 4 5 】

なお、前述した実施形態では図 1 に示すように燃焼排ガスを対流部 1 3 から流路 2 0₇ を経由、分岐して二酸化炭素回収装置 4 0 に導入したが、図 3 に示すように燃焼排ガスが対流部 1 3 からそのまま二酸化炭素回収装置 4 0 に導入される

ようにして、常時全量処理をするようにしてもよい。

【 0 0 4 6 】

【発明の効果】

以上詳述したように本発明によれば、系内で発生する燃焼排ガスの全量から二酸化炭素を回収し、合成ガスの原料として使用して合成ガスの増産化に寄与できるとともに、該二酸化炭素の大気中への放出をほぼゼロとし、地球温暖化防止上の観点から地球環境保全に大きく寄与することができる。

【 0 0 4 7 】

また、前記二酸化炭素を合成ガスの原料として使用してさらに残部が生じた場合においても、回収された二酸化炭素は地中に固定化する等ができ、大気中へ放出すること無く処理することができる。

【 0 0 4 8 】

さらに、本発明によれば熱が合成ガスの合成に使用された後の燃焼排ガスに、なおも有する熱エネルギーを、ボイラー水から中圧又は高圧スチームを生成するために有効に利用し、この生成したスチームで、系内の二酸化炭素回収装置で回収された二酸化炭素を原料ガスとして送りこむ等のために圧縮（昇圧）する圧縮機用スチームタービンを駆動すると共に二酸化炭素回収装置系内の加熱源として利用できるようにしたことにより、熱エネルギーを系外へ放出することなく、省エネルギーで合成ガスを合成できる。

【 0 0 4 9 】

また、前記生成したスチームの一部を原料ガスに供給できるようにしたことにより、系外からのスチーム供給をゼロにする又は減らすことができ、省エネルギーと合成ガスの増産化に寄与できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施形態に用いられる合成ガス製造の要部を示す概略図。

【図 2】

図 1 に組み込まれた二酸化炭素回収装置を示す概略図。

【図 3】

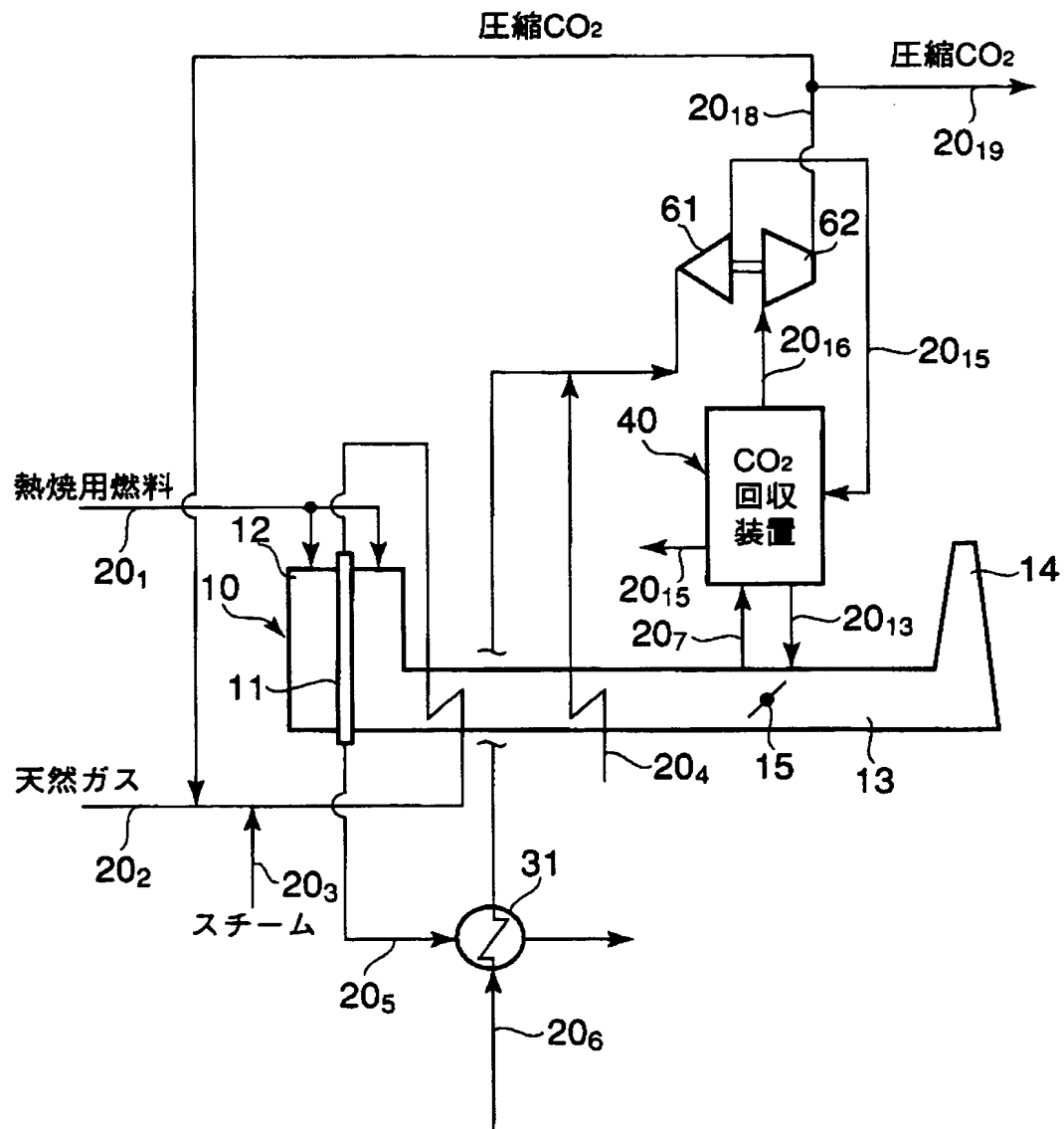
本発明の他の実施形態に用いられる合成ガス製造の要部を示す概略図。

【符号の説明】

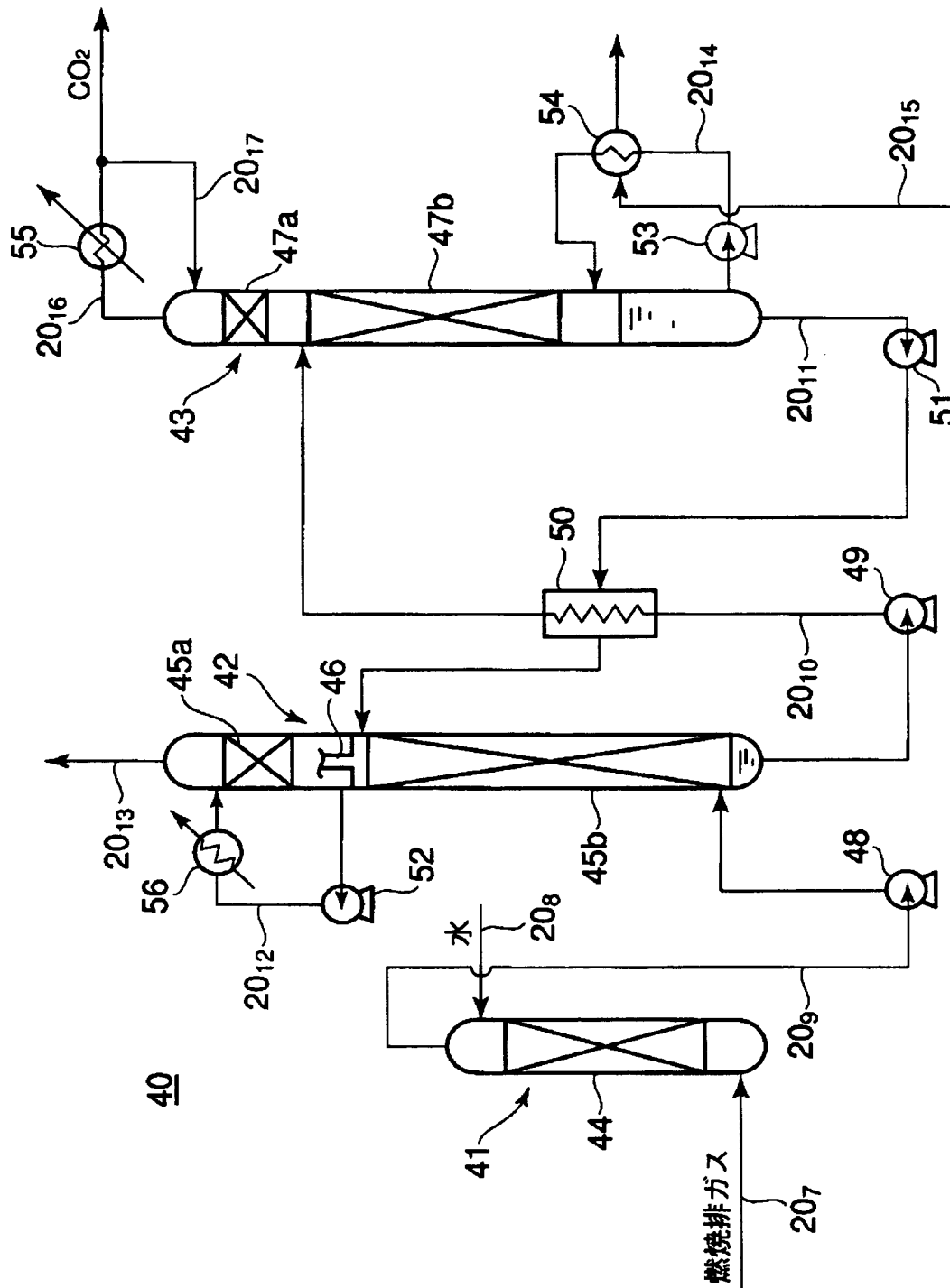
- 1 0 …改質器、
- 1 1 …反応管、
- 1 2 …燃焼輻射部、
- 1 3 …対流部、
- 1 5 …ダンパ、
- 2 0₁ …燃料導入用流路、
- 2 0₂ …原料ガス導入用流路、
- 3 1 …熱交換器、
- 4 0 …二酸化炭素回収装置、
- 4 1 …冷却塔、
- 4 2 …二酸化炭素吸収塔、
- 4 3 …吸収液再生塔、
- 5 4 …再生塔用熱交換器。
- 6 1 …スチームタービン、
- 6 2 …圧縮機。

【書類名】 図面

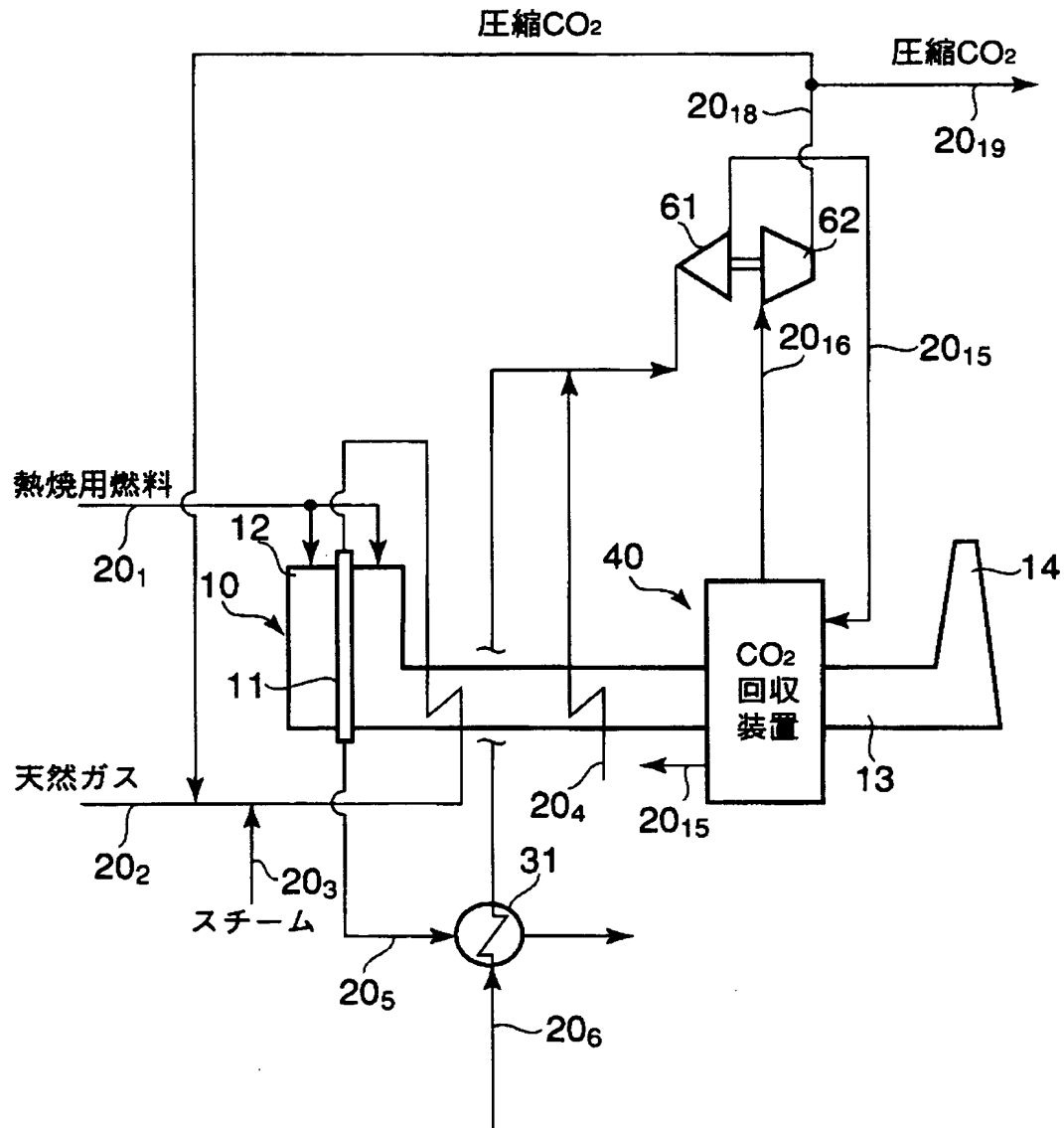
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質器の全量燃焼排ガスから改質工程で発生する熱源を利用して回収しさらに圧縮して、この圧縮二酸化炭素の一部を合成ガスの原料ガスとし、残部を地中等の系外に排出して大気中への二酸化炭素の放出をほぼゼロにすることが可能な合成ガスの製造方法を提供する。

【解決手段】 天然ガスと水蒸気を外部加熱方式の改質器に供給し、水素及び一酸化炭素を主成分とする合成ガスを製造する合成ガスの製造方法において、

前記改質器の改質管を加熱するための燃焼輻射部より排出される全量の燃焼排ガスより二酸化炭素を二酸化炭素回収装置により回収し、回収した該二酸化炭素を圧縮機で圧縮してその一部又は全部を前記改質器へ供給される前の前記天然ガスに混合し合成ガスの原料とすることを特徴とする。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 6 2 0 8]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 1 0 日
[変更理由] 新規登録
住 所 東京都千代田区丸の内二丁目 5 番 1 号
氏 名 三菱重工業株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 5 月 6 日
[変更理由] 住所変更
住 所 東京都港区港南二丁目 1 6 番 5 号
氏 名 三菱重工業株式会社